

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-163822

(43) 公開日 平成7年(1995)6月27日

(51) Int.Cl. <sup>4</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
B 0 1 D. 39/20	D			
39/00	B			
46/00	3 0 2	7446-4D		
C 0 4 B 38/00	3 0 3 Z			

C 0 4 B 35/ 16

A

審査請求 未請求 請求項の数4 O L (全 7 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平5-313031

(22) 出願日 平成5年(1993)12月14日

(71) 出願人 000004064

日本碍子株式会社

愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号

(72) 発明者 笠井 義幸

愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日  
本碍子株式会社内

(72) 発明者 熊澤 和彦

愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日  
本碍子株式会社内

(72) 発明者 小谷 亘

愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日  
本碍子株式会社内

(74) 代理人 弁理士 服部 雅紀

(54) 【発明の名称】 コージェライト質セラミックフィルタとその製造方法

(57) 【要約】

【目的】 逆洗再生時の再生能力に優れ、高い機械的強度を有し、かつ、軽量コンパクトなコージェライト質セラミックフィルタとその製造方法を提供する。

【構成】 気孔率30%以上のコージェライト粉末を骨材とし、これにコージェライト化原料、造孔剤、成形助剤、溶剤を加えて混合、混練を行い、ハニカム状に押出し成形後、焼成を行う。フィルタの平均細孔径を骨材の平均径 $\times 0.15 \pm 5 \mu\text{m}$ 以内とし、フィルタ全体の気孔率を30%以上として流路方向の圧縮強度を $100 \text{ kgf/cm}^2$ 以上とする。流路隔壁の厚さを $300 \sim 2000 \mu\text{m}$ とし、フィルタ部断面の開孔率を $63 \sim 71\%$ とする。

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 流体中より固相を分離するためのコーゼライト質セラミックフィルタにおいて、該フィルタがコーゼライト質セラミック骨材の組合せよりなり、流路隔壁がハニカム形状に形成され、その両端は千鳥状に目封止が施され、フィルタの平均細孔径が、フィルタ骨材の平均径 $\times 0.15 \pm 5 \mu\text{m}$ 以内であり、フィルタ全体の気孔率が30%以上であり、流路方向の圧縮強度が $100 \text{ kgf/cm}^2$ 以上であることを特徴とするコーゼライト質セラミックフィルタ。

【請求項2】 流路隔壁の厚さが $300 \sim 2000 \mu\text{m}$ であり、フィルタ断面の開孔率が63~71%であることを特徴とする請求項1記載のコーゼライト質セラミックフィルタ。

【請求項3】 骨材となる気孔率30%以上のコーゼライト粉末100重量部、骨材の架橋となるコーゼライト化原料5~30重量部および造孔剤30重量部以下に成形助剤、溶剤を加えて混合、混練を行い、ハニカム形状に押出成形後、焼成を行うことを特徴とするコーゼライト質セラミックフィルタの製造方法。

【請求項4】 コーゼライト粉末の平均粒子径が押出ダイススリットの20%以下であることを特徴とする請求項3記載のコーゼライト質セラミックフィルタの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、高温のガス用フィルターとして適したコーゼライト質セラミックフィルタおよびその製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 近年、多孔質のセラミックフィルタとしてコーゼライトからなるハニカム構造体の隔壁を通過せしめることにより、ガス等の流体に対してフィルタ機能を持たせる多孔質のハニカムフィルタが種々提案されている。コーゼライトセラミックスは他の材料に較べて耐熱性に優れているので、比較的高い温度や、高い耐熱衝撃性が必要とされる場所で使用され、例えば自動車の三元触媒担体として使用されている。

【0003】 従来のコーゼライト質セラミックフィルタ、特にディーゼルエンジンから排出される排ガス中の微粒子捕集用のものは、フィルタの再生がセラミックフィルタ内での燃焼による再生方法によって行われているために、部分的な劣化、溶損等の問題が生じることから、長期間の安定的使用に問題があった。これらの問題を解決するために逆洗パルスエアによる再生方法が提案されているが、逆洗再生時の再生能力が不十分であったり、機械強度が自動車に搭載できるレベルを有していなかったり、これらをカバーするためにシステムが大きくなってしまふ等、種々の問題があった。

【0004】 一方、従来のコーゼライト質セラミック

2

フィルタはタルク、カオリン、アルミナ等を主原料として成形助剤を添加し、押出し成形後焼成し目封止を行うことによってフィルタを得ているが、特開昭61-129015号公報では、フィルタ隔壁の表面に存在する細孔に関して、孔径 $5 \sim 40 \mu\text{m}$ の小孔と $40 \sim 100 \mu\text{m}$ の大孔の細孔数比を1:5~40とすることでフィルタ性能を改善する技術が公開されている。しかし、これは燃焼再生方式を前提とした技術であり、逆洗パルスエアによる再生を考えておらず、ここに開示されたフィルタをそのまま逆洗パルス再生しても十分な再生が行われないのである。

【0005】 逆洗再生式のフィルタとしては、特開昭63-31517号公報ではコーゼライト、 $\beta$ -スポンジューメン、チタン酸アルミニウム、ムライト、ジルコニア、炭化珪素、窒化珪素などから選ばれる一種または二種以上のセラミック微粉、あるいは粘土、フリット等の結合材とともに焼成しセラミックフィルタを得る方法が記載されている。この方法では十分な機械的強度が得られなかったり、逆洗パルスエアによる再生が十分になされず、自動車に搭載し有用な捕集時間を示すフィルタが得られないという問題があった。

【0006】 特公昭60-2272号公報では、等方的熱膨張を得るために、予め合成された不定形状のコーゼライト粉末とコーゼライト化原料を理論組成となるように配合し、成形、焼成をおこなうことによってコーゼライト体を得ることが記載されている。しかし、この技術では触媒担体を対象としており、耐熱衝撃性を重視されるものにおいて有用であるが、コーゼライト粉末の気孔率、粒径に関する記載がなされておらず、フィルタとして重要な捕集効率を有するに十分ではないものであった。

【0007】 また、特開平3-68411号公報には、市販されている適当な粒度の緻密なコーゼライトを選んで骨材に用いることによって、通気圧損が小さく、強度も実用レベルにあるものが作成できることが記載されている。この方法では骨材を緻密とするために気孔率の高いコーゼライト粉末を再焼成したり、LAS原料を添加してコーゼライト骨材を緻密化する工程が必要不可欠であり、大幅な工数増となる問題があった。

## 【0008】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は以上の現状を背景としてなされたもので、その目的とするところは、逆洗再生時の再生能力に優れ、高い機械的強度を有し、かつ、軽量コンパクトなコーゼライト質セラミックフィルタとその製造方法を提供することにある。

## 【0009】

【課題を解決するための手段】 上記の課題を解決するために、本発明のコーゼライト質セラミックフィルタは、

(1) 流体中より固相を分離するためのコーゼライ

10

20

30

40

50

3

ト質セラミックフィルタで、コーゼライト質セラミック骨材の組合せよりなり、流路隔壁がハニカム形状に形成され、その両端は千鳥状に目封止が施され、フィルタの平均細孔径が、フィルタ骨材の平均径 $\times 0.15 \pm 5 \mu\text{m}$ 以内であり、フィルタ全体の気孔率が30%以上であり、流路方向の圧縮強度が $100 \text{ kgf/cm}^2$ 以上であることを特徴とする。

(2) 流路隔壁の厚さが $300 \sim 2000 \mu\text{m}$ であり、フィルタ部断面の開孔率が63~71%であることを特徴とする。

【0010】また、本発明のコーゼライト質セラミックフィルタの製造方法は、

(3) 骨材となる気孔率30%以上のコーゼライト粉末100重量部、骨材の架橋となるコーゼライト化原料5~30重量部および造孔剤を30重量部以下に成形助剤、溶剤を加えて混合、混練を行い、ハニカム状に押出し成形後、焼成を行うことを特徴とする。

(4) 上記の製造法において、コーゼライト粉末の平均粒子径が押出ダイススリットの20%以下であることを特徴とする。

【0011】本発明のセラミックフィルタにおいては、フィルタ骨材としてコーゼライト質セラミックスを用いることにより高温のエンジン排ガスに耐え得るものとしている。フィルタはハニカム状の隔壁によって流路が形成されている。ハニカムの両端は千鳥状に目封止されており、目封止された流路の他端は開口するように構成されている。排ガスはハニカム状フィルタの開口している流路の一端から入り、後述するように多孔質に形成された隔壁を通過し、隣接する流路を経てその開口端に至りフィルタ外へ排出される。排ガスが隔壁を通過するとき、排ガスに含まれた粉塵粒子は隔壁に捕集される。上述のように隔壁をハニカム状に形成することによって単位体積当りのフィルタ面積を大きく取ることができる利点がある。

【0012】セラミックフィルタをコーゼライト化原料のみで作成するとフィルタ中の細孔は図2に示す従来例のような連鎖性の悪い細孔となる。これはコーゼライト化原料中のタルク、シリカによって細孔が形成されるため、タルク、シリカの粒子形状を残すことによるものである。このような連鎖性の悪い細孔は逆洗再生時の逆洗パルスエアによる再生が十分になされず、時間の経過とともに圧力損失が増大し均一なフィルタ特性を得ることができない。

【0013】本発明のセラミックフィルタでは、骨材となるべきコーゼライト粒子を予め原料として使用し、これをコーゼライト化原料によって架橋し、繋げることによって機械強度の増大を図った。この方法によれば、コーゼライト粉末によって形成される骨材間に見える細孔は図1のように連鎖性に優れたものとなり、逆洗パルスエアによる再生がされやすい。

4

【0014】このようにして、本発明のセラミックフィルタにおいては、フィルタ全体としての気孔率を30%以上としても十分な機械的強度、具体的には流路方向の圧縮強度 $100 \text{ kgf/mm}^2$ 以上を保ちながら、濾過速度、または圧力損失を低くすることができ、産業上有用とされる捕集時間をもつことができる。一方、細孔連鎖性、気孔率の上昇を重視しすぎると骨材間の架橋が十分でなくなり機械強度の劣化がおこる。本発明者は種々の検討、実験の結果、フィルタの平均細孔径を、骨材粒子径 $\times 0.15 \pm 5 \mu\text{m}$ 以内とすることにより細孔連鎖性と機械強度を併せもつフィルタとなり、産業上有用な逆洗再生式のコーゼライト質セラミックフルタとなることを見出した。

【0015】すなわち、細孔の平均径が、骨材径 $\times 0.15 + 5 \mu\text{m}$ を超えると粉塵粒子までフィルタ隔壁を通過してしまい、捕集効率が低下するか、隔壁の機械的強度が低下する。また、細孔の平均径が、骨材径 $\times 0.15 - 5 \mu\text{m}$ を下回るものは圧力損失を増し、さらに細孔の連鎖性を損うため、逆洗特性が劣化する。本発明のセラミックフィルタの好ましい態様では、流路隔壁の厚さを $300 \sim 2000 \mu\text{m}$ とする。流路隔壁の厚さが小さ過ぎると、ハニカム成形体の成形が困難になるうえ、機械的強度に不足をきたし、粉塵の捕集能力が小さくなり、頻繁に再生を行う必要を生じるなどの不都合を生じる。また、流路隔壁の厚さが過大であれば、圧力損失が増すほか、単位体積当りのフィルタ面積（以下「体積効率」と呼ぶ）の低下をきたす。

【0016】フィルタ部の開孔率はフィルタ部の外径、流路の密度、流路隔壁厚さなどに関連してフィルタの体積効率、機械的強度、圧力損失等に影響するが、本発明のセラミックフィルタでは開孔率を63~71%とする。また、気孔率30%以上のコーゼライト粉末を使用すると、コーゼライト粉末に内在する気孔が、焼成時における焼成収縮によって、骨材間の細孔として作用し、連鎖性のよい細孔を得ることができる。

【0017】骨材となるコーゼライト粉末の粒子径は好ましくは $5 \sim 450 \mu\text{m}$ の範囲で、押出ダイススリットの20%以下の値とするのが好ましい。これによって押出成形時に粉末粒子が十分に圧着され、ハニカム成形体の成形性が良好となり、機械的強度が向上する。コーゼライト粉末の平均粒径が押出ダイススリットの20%を超えると成形時に不具合が生じ、成形体が完全なものとならないばかりでなく、押出圧力が増大し押出ダイスに変形を生じるおそれがある。

【0018】コーゼライトは焼結しにくいセラミックスなので、コーゼライト粉末のみを焼結したのでは機械的強度が十分でない。本発明のコーゼライト質セラミックフィルタの製造法においては、コーゼライト粉末を架橋して粉末同志を結合するために、骨材100重量部に対して、架橋剤としてコーゼライト化原料を

5～30重量部添加する。

【0019】骨材の架橋となるべきコーゼライト化原料としては、例えば、タルク、カオリン、アルミナ、シリカ等をコーゼライト組成となるように配合して用いる。このコーゼライト化原料はそれのみで焼成を行った場合、気孔率が35%以上となるものを使用するのが好ましい。また、このコーゼライト化原料は、熱膨張特性、熱安定性、化学的安定性が良好であって、液相反応によって架橋剤として有効に作用し、細孔の連通性の向上にも有効である。しかし、コーゼライト化原料の添加量が過剰になると、それによってインク壺形の閉塞した細孔が形成され、細孔同志の連通性が損われ、逆洗再生能力が低下する。架橋剤としてコーゼライト化原料を所定の範囲で添加することにより、逆洗特性に優れ、機械的強度の高い焼結体を得られるのである。

【0020】造孔剤は、焼成時に酸化、気化することによって焼結体内に細孔を形成するのを助けるために加えるもので、例えば、適当な寸法のカーボン粉、ポリウレタン粉等を用いることができる。骨材100重量部に対して造孔剤を30重量部以下の範囲で添加することができる。成形助剤および溶剤は原料粉末の混練および押出成形を助けるもので、通常のセラミックス粉末の押出成形に用いられるものを使うことができる。成形助剤としては例えばメチルセルロース、ジエチレングリコールステアレート等が挙げられ、その種類、添加量は適宜に選\*

\* 択してよいが、押出圧力の低下、成形体の成形性のために、骨材100重量部に対して助剤合計で3重量部以上を添加することが好ましい。

【0021】ハニカム成形体の焼成温度はコーゼライト化原料がコーゼライトを焼結し始める温度以上で、かつ、コーゼライトの融点以下の温度範囲で選ぶ。焼成温度が高過ぎるとコーゼライト骨材がガラス化し熱膨張係数が大きくなる。好ましくは1350～1430℃の温度範囲で焼成する。なお、フィルタ端面の千鳥状目封止はフィルタ本体の焼成前に行ってもよいし、本体の焼成後に行ってもよい。

【0022】

【実施例】以下、本発明を実施例によって具体的に説明する。

(実験1) 表1に示す組成と物性とを有するコーゼライト粉末を骨材とし、表2に示す組成を有する原料を表2の配合割合の欄に示す割合で調合してコーゼライト化原料とした。また造孔剤としてグラファイトを用いた。骨材、コーゼライト化原料および造孔剤を表3のように配合した。各試験パッチには成形助剤としてメチルセルロース10重量部、ジエチレングリコールステアレート3重量部を添加した。これらに溶媒として水を加え、混合、混練を行い押出成形用の坯土とした。

【0023】

【表1】

コーゼライト粉末 種類	成 分 (wt%)					平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )	気孔率 (%)
	MgO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	CaO	NaO		
A	13.7	35.5	50.5	0.1	0.2	65	30
B	13.7	35.5	50.6	0.1	0.1	70	30
C	13.7	35.5	50.5	0.1	0.2	65	25
D	13.7	35.4	50.6	0.1	0.2	66	40
E	13.7	35.4	50.6	0.1	0.2	430	30
F	13.7	35.5	50.5	0.1	0.2	55	30

【0024】

※ ※ 【表2】

原料の種類	成 分 (wt%)						配合割合 (%)
	lg-loss	MgO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
タルク	5.7	30.7	1.2	60.9	—	1.0	40.0
カオリン	13.9	—	38.6	45.5	0.8	0.4	25.0
仮焼カオリン	0.1	—	45.1	53.1	0.8	0.4	21.0
アルミナ	0.3	—	99.4	—	—	—	14.0

【0025】

【表3】

区 分	コージェライト粉末 種 類	コージェライト粉末 (重量%)	コージェライト化原料 (重量%)	造孔剤 (重量%)	隔壁厚さ ( $\mu\text{m}$ )	骨材径 ( $\mu\text{m}$ )	気孔率 (%)	細孔径 ( $\mu\text{m}$ )	圧縮強度 ( $\text{kgf}/\text{cm}^2$ )	圧力損失 ( $\text{mmHg}$ )	捕集効率 (%)	逆洗特性 ( $\text{cmH}_2\text{O}$ )
実施例 1	A	95	5	—	301	60	30.2	4.1	115.2	250	99.0	380
実施例 2	A	95	5	30	302	59	40.4	9.5	105.5	215	93.8	340
実施例 3	A	70	30	—	300	60	32.1	7.1	121.8	205	95.0	550
実施例 4	A	70	30	30	302	58	41.9	11.9	108.0	193	91.2	505
実施例 5	D	95	5	—	303	56	37.0	9.2	113.2	210	97.0	360
比較例 1	—	—	100	—	302	—	40.0	15.7	152.0	180	91.0	610
比較例 2	A	100	—	—	300	60	27.2	2.9	98.0	260	99.5	350
比較例 3	A	95	5	40	302	58	44.2	10.2	99.0	204	88.7	320
比較例 4	A	70	30	40	303	59	45.3	12.6	99.0	178	86.0	490
比較例 5	A	60	40	40	301	58	46.0	14.3	103.0	155	80.3	540
比較例 6	B	70	30	—	56	形 不 能	—	—	—	—	—	—
比較例 7	C	70	30	30	298	61	36.9	4.1	116.0	233	96.0	580
比較例 8	C	95	5	30	299	62	32.0	3.8	108.5	252	97.6	390

【0026】これらの坯土をスリット幅 $330\mu\text{m}$ 、 $1\text{cm}^2$  当り38セルの押出ダイスを用いて、 $130\text{mm}\phi\times 170\text{mm}$ に押出成形を行い $1400^\circ\text{C}$ で焼成を行った。焼成後、目封止を施しフィルタ試料を得た。フィルタ試料について隔壁厚さ、セル数の測定を行い、また煮沸法による気孔率測定、水銀圧入法による細孔径測定を行った。フィルタ試料から $25.4\text{mm}\phi\times 25.4\text{mm}$ の円筒試料を切出して流路方向の圧縮強度を測定した。骨材径はSEM観察によって求めた。

【0027】フィルタ特性は図3に示す測定装置を用い、排ガス流量 $3\text{m}^3/\text{分}$ 、逆洗パルス圧 $6\text{kgf}/\text{cm}^2$ 、パルス間隔5分、パルス時間0.5秒の条件で、逆洗特性、圧力損失を求めた。その結果を表3に示す。ここに捕集効率は試験開始から3時間までの間に捕集タンク14に捕集された塵埃粒子の捕集量と発生量の平均捕集時間の比をもって捕集効率とした。3時間後はここで示される捕集効率よりも値が大きくなるか、または、これらと同じ値を示すものである。

【0028】また、圧損測定装置12で圧力損失を測定し、試験開始から3時間後における圧力損失を逆洗特性とした。逆洗特性に優れるものは使用時間3時間までの圧力損失値が小さく、逆洗特性が悪いものはこの値が大きくなるものである。表3によれば気孔率が30%を超え、かつ、フィルタの細孔径が、骨材径 $\times 0.15\pm 5\mu\text{m}$ 以内のものは圧縮強度、フィルタ特性ともに優れていることが判る。フィルタ細孔径が骨材径 $\times 0.15-$

5以下のものは圧力損失が大きく、エンジンの負荷となることが明白である。

【0029】一方、骨材径 $\times 0.15+5\mu\text{m}$ 以上の平均細孔径を有するフィルタでは捕集効率が低下し有用なフィルタとして作用しないことが判る。また、気孔率30%以下のフィルタも圧力損失が大きい。また、これらフィルタは気孔率30%以上のコージェライト粉末を使用しコージェライト化原料を5~30重量部添加し造孔剤を30重量部以下とした時に得られることが判る。コージェライト化原料を5重量部以下とした時は、骨材間の架橋が不足となり圧縮強度の低下が起こるだけでなく、圧力損失の増大も起こる。また、30重量部以上の添加では骨材間の架橋は十分となり、圧縮強度は上昇するが、細孔の形態が連鎖性の悪い図2に近いものとなり、逆洗性が劣化してくることが判る。また、造孔剤を30重量部以上添加すると気孔率は上昇するものの、骨材間の架橋を妨げるものとなり、圧縮強度が低下することが判る。

【0030】(実験2)押出スリット幅、セル構成を種々変更し、それ以外は実験1と同様な製法によって各種セラミックフィルタを製作した。コージェライト粉末、コージェライト化原料、造孔剤添加量および各測定結果を表4に示す。

【0031】

【表4】

区 分	コージェライト粉末 種 類	コージェライト粉末 (重量%)	コージェライト化原料 (重量%)	造孔剤 (重量%)	隔壁厚さ ( $\mu\text{m}$ )	骨材径 ( $\mu\text{m}$ )	セル数 ( $1/\text{cm}^2$ )	開孔率 (%)	気孔率 (%)	細孔径 ( $\mu\text{m}$ )	圧縮強度 ( $\text{kgf}/\text{cm}^2$ )	圧力損失 ( $\text{mmHg}$ )
実施例 2	A	95	5	30	302	59	31.0	70.8	40.4	9.5	105.5	215
実施例 6	A	95	5	30	301	59	46.5	63.3	40.5	9.6	128.4	252
実施例 7	A	95	5	30	2003	59	0.6	71.0	40.3	9.5	105.3	255
実施例 8	A	95	5	30	434	59	15.1	68.9	40.5	9.4	113.6	220
比較例 9	A	95	5	30	300	60	15.5	77.8	40.3	9.4	78.1	180
比較例 10	A	95	5	30	300	60	62.0	58.3	40.4	9.4	144.7	268
比較例 11	A	95	5	30	2008	59	0.6	69.7	40.4	9.4	106.5	264
比較例 12	E	95	5	30	2001	398	0.6	70.8	43.2	60.4	100.3	240
比較例 13	F	95	5	30	250	49	62.0	64.5	37.3	7.8	98.0	240

【0032】表4より、隔壁厚さが2000 $\mu\text{m}$ を超えるものは圧力損失が高く、また、300 $\mu\text{m}$ 以下のものは圧縮強度が低下し自動車に搭載できるレベルの強度を有していないことが判る。また、これら隔壁厚さの範囲にあっても、フィルタ断面の開孔率が63%以下のものは（捕集効率に優れ：データなし）圧縮強度は十分であるが圧力損失が大きく実使用できない。開口率が71%を超えると圧縮強度が低下しさらに、フィルタ有効面積も小さくなることから産業上有用なフィルタとなりえないことが判る。

#### 【0033】

【発明の効果】本発明のコージェライト質セラミックフィルタおよびその製造方法によって、捕集効率が高く、圧力損失が小さく、軽量かつコンパクトで、逆洗特性に優れた、自動車に搭載可能な強度を有するコージェライト質セラミックフィルタとその製造方法を提供することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のコージェライト質セラミックフィルタの典型例の組織を模式的に示す断面図である。

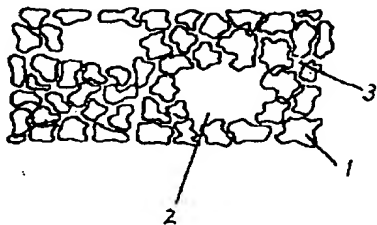
【図2】従来のコージェライト質セラミックフィルタの典型例の組織を模式的に示す断面図である。

【図3】フィルタ特性測定装置の概念図である。

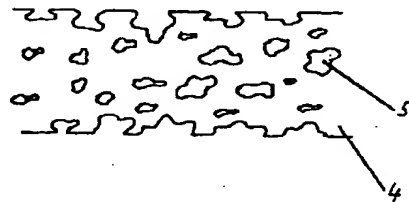
#### 【符号の説明】

- 1 骨材
- 2 コージェライト化原料による細孔
- 3 連鎖孔
- 4 コージェライト
- 5 細孔
- 11 フィルタ試料
- 12 圧損測定装置
- 13 バルスエア供給部
- 14 捕集タンク
- 15 フィルタ

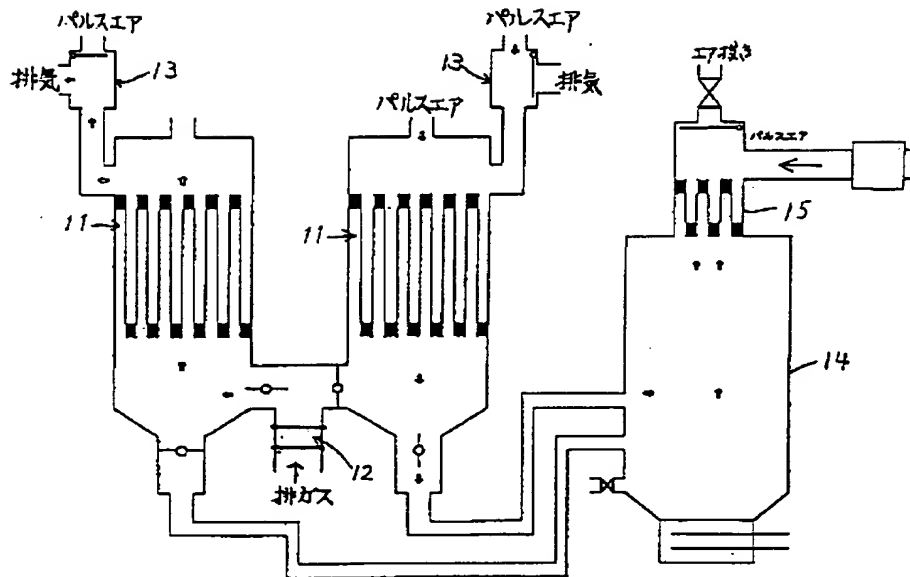
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>

C 0 4 B 38/06

// C 0 4 B 35/195

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

B